サブミクロン金粒子低温焼結マイクロ接合構造の機械的疲労信頼性評価

澁谷 忠弘*, 于 強*, 藤澤 良知**, 鶴見 和則***, 小柏 俊典***, 宮入 正幸***

Mechanical Fatigue Reliability Evaluation for Micro Sintered Compact Joint Made from Sub-Micron Gold Powder

Tadahiro SHIBUTANI*, Qiang YU*, Yoshitomo FUJISAWA**, Kazunori TSURUMI***,
Toshinori OGASHIWA*** and Masayuki MIYAIRI***

*横浜国立大学大学院工学研究院システムの創生部門システムのデザイン分野 (〒240-8501 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5)

**横浜国立大学大学院工学府システム統合工学専攻機械システム工学コース (〒240-8501 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5)

***田中貴金属工業株式会社 (〒254-0076 神奈川県平塚市新町 2-73)

*Department of Systems Design, Division of Systems Research, Faculty of Engineering, Yokohama National University (79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 240-8501)

**Department of Mechanical Engineering, Division of Systems Integration, Graduate School of Engineering, Yokohama National University (79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 240-8501)

***Tanaka Kikinzoku Kogyo K.K. (2-73 Shinmachi, Hiratsuka-shi, Kanagawa 254-0076)

概要 本研究では、サブミクロン金粒子焼結体を対象として焼結試験片を用いて機械的特性を評価するとともに、フリップチップ接合バンプ試験片に対して機械的せん断疲労試験を行い低サイクル疲労特性について検討した。サブミクロン金粒子焼結体は、粒子サイズに起因して焼結温度によって微視組織が大きく異なる。焼結温度の増大とともに、粒子が溶けずに集合体組織を形成するクラスター構造からスポンジ状の多孔質体へと変化する。機械的性質は、焼結温度によって大きく異なっており、微視組織の影響が顕著に現れている。フリップチップ接合体の機械的せん断疲労試験では、界面破壊が支配的な場合には寿命は低くなるもののバンプ内での疲労破壊の場合には鉛フリーはんだ材料と比較しても同程度の寿命特性を有していることがわかった。金焼結体では、引張強度だけでなく弾性定数も低い値となっているため接合体の上下の変形ミスマッチの多くを弾性変形が吸収する。このため、変位制御型の疲労試験においては相対的に非線形ひずみの蓄積が減少するため、同じ負荷変位に対しては従来のはんだ材料と比較しても高寿命になると考えられる。

Abstract

This study focused on the low-cycle fatigue resistance of a sintered bump made of sub-micron gold powders. The tensile properties of sintered specimens made of sub-micron gold powders were measured and mechanical shear fatigue tests for flip chip specimens with nine gold sintered bumps were carried out. Since the diameter of gold powder reaches several hundred nanometers, the sintering temperature affects the microstructures of the sintered compact. As the sintering temperature increases, the microstructures of the sintered compacts change from a cluster consisting of several gold powders to a void fill. The material properties of the sintered compact also vary from the low sintering temperature to the higher one and depend on the microstructures. When no interfacial fracture takes place in the mechanical shear fatigue test for the flip chip specimens, the number of cycles to failure of sintered bumps is almost the same as that of lead-free solders. A sintered compact made of sub-micron gold powders not only has low tensile strength but also a low elastic constant. In a displacement-controlled mechanical fatigue test the number of cycles to failure increases, since the accumulated inelastic strain decreases relatively.

Key Words: Sub-micron Gold Powder, Sintered Compact, Flip Chip Bonding, Low-Cycle Fatigue, FEM

1. 緒言

電子機器の小型化、高密度実装化が進み、開発期間の短縮、少量多品種の傾向が強くなるなか、小型かつ高機能なシステムを実現する SiP (System in Package) 技術が注目されている^{1),2)}。フリップチップ接続技術のなかで、特に樹脂フィルム NCF (Non Conductive Film) を用いた圧接工法による接続方法は低コスト、短 TAT (Turn Around Time)、かつ鉛フリー対応の低温接続という特徴があり、狭ピッチ接続

を実現する方法として有望視されている³⁾が、構造設計や材料選定が適切でないと熱サイクル負荷が加わったときに接触状態が不安定になり、断線を起こしやすいなどの課題があり、はんだバンプを用いたフリップチップ接続のように広く適用されるまでには至っていない^{4),5)}。

一方、サブミクロンオーダーの金属粒子を用いた焼結材料が次世代機能材料として注目されている⁶⁾。サブミクロン粒子焼結体の特徴としては焼結温度が融点に比べ大幅に低下することが挙げられる。このため微細化に伴い限界に

達しつつある接合はんだ材の代替材料としても期待が大きい。しかし、その機械的特性については不明な点が多く体系的に検討している例は少ない。

本研究では、サブミクロン金粒子焼結体を対象として引張試験を行い、その機械的性質について検討した。金焼結体バンプを用いたフリップチップ接続では焼結温度が230°C~340°Cであるため、超音波振動により通常のはんだ接続のような金属間接合が可能であり、金バンプを用いた場合の諸問題を解決できる新材料として期待される。そこで、金焼結体を用いたフリップチップ試験片を作製し、機械的せん断疲労試験を行い、低サイクル疲労特性および破壊メカニズムについて検討した。

2. 金焼結体の引張-応力緩和試験

2.1 供試材および試験方法

金焼結体の疲労強度評価には、まず金焼結体の材料物性を取得する必要がある。しかし、低温サブミクロン焼結体の材料物性、特に非線形特性についての報告例は皆無である。そこでサブミクロン金粒子を焼結させて引張試験片を作製し、引張試験を実施した。試験片は、Fig. 1に示す平均粒径が0.2 μm の金粒子を溶媒と混ぜペースト状にし、金型に充填した後、大気中で230°C、260°C、340°Cの炉において1時間焼結させた。このとき加圧などは行っていない。焼結させた後、バリを取り除くために最終的に1000番で研磨した。作製した試験片は厚さ1mmの平板の試験片でその形状をFig. 2に示す。

それぞれの焼結温度において作製した試験片について引張-応力緩和試験を行った。試験機は恒温槽を具備した微小な変位(0.01 μm)の制御が可能なインストロン社製のマイクロフォース試験機(INSTRON 8800D)を使用した。試験は変位制御、変位速度0.14 [$\mu\text{m}/\text{s}$]で負荷した後30分保持した。試験温度は室温および150°Cの条件で行った。応力は試験機に生じた荷重を試験片の断面積で割った値、ひずみは試験機の軸の変位を試験片平行部の長さで割った値で算出した。縦弾性率は応力-ひずみ曲線の初期勾配から算出した。クリープ特性は保持したときの応力緩和曲線から一般的にはんだ材のクリープ特性評価に用いられているNorton則を用いて評価した。ただし、焼結温度260°Cの試験片については破断するまで試験を行い、伸びを測定した。これより、塑性・クリープ特性を効率よく取得できる。

2.2 機械的性質

Fig. 3に試験温度が室温、150°Cの各焼結温度における応力-ひずみ曲線を示す。また、Table 1には各試験より得られる機械的性質をまとめたものを示す。いずれの試験においても、焼結体としては顕著な非線形特性を示している。特に、破断試験を実施した焼結温度が260°Cの場合において、最大ひずみ量は4%を超えている。縦弾性率については、すべての試験において20 GPa以下となっており、金バ

Fig. 1 Sub-micron gold powders for paste

Fig. 2 Shape of the specimen for tensile test

Fig. 3 Results of tensile-relaxation tests (S.T: sintering temperature)

ルク材(80 GPa)の特性と比較すると非常に低い。引張強さについても、金バルク材の値(260 MPa)と比較してもおおむね低い値となっている。特に、低温焼結した場合(焼結温度: 230°C)では、引張強度は63.7 MPaとなっており一般的な鉛フリーはんだ材料の引張強度に近い値となっている。

Table 1. Material properties summary

Sintering temperature [°C]	Test temperature [°C]	Young's modulus [GPa]	Tensile strength [MPa]	Creep constant [MPa/h]	Creep exponent
230	25	9.5	63.7	1.00×10^{-40}	22.00
	150	3.1	20.7	8.00×10^{-17}	12.69
260	25	10.4	120.5	—	—
	150	3.9	20.5	1.70×10^{-13}	8.49
340	25	16.1	168.6	4.48×10^{-40}	16.88
	150	10.2	42.7	1.07×10^{-17}	9.50

(a) At 25°C

(b) At 150°C

Fig. 4 Steady state creep rate

Fig. 4は応力緩和曲線から求めたクリープ特性を応力が20~80 MPaの範囲でクリープひずみ速度を計算したグラフである。室温ではクリープひずみ速度は非常に小さくほとんどクリープ変形は生じていない。試験温度が150°Cになると、いずれの試験片も室温と比較するとクリープ変形量が増大している。また、焼結温度別に見ると、焼結温度が低いほど図中にプロットした範囲内ではクリープ変形量は大きくなっている。なお、図中には共晶鉛はんだと代表的なSn系鉛フリーはんだのクリープ特性も合わせて示している。室温では、Sn系合金と比較するとクリープ変形量は非常に小さいものの、高温時(150°C)では低温焼結試験片(230,

Fig. 5 SEM images of the fracture surfaces

260°C)ではほぼ同等のクリープ変形特性を有している。特に、高応力側(80 MPa)では、共晶はんだ材料よりもクリープひずみ速度は大きな値を示す。

2.3 試験片の破面様相と微視組織

常温保持試験終了後、破断試験を行い破面のSEM観察を行った。各焼結温度の破面様相(×40)および拡大写真(×15000)をFig. 5に示す。引張曲線ではいずれの試験片においても非線形特性を示していたが焼結温度230°C, 260°Cの試験片の破面では、全面がほぼ平坦であり脆性破壊に近い様相を呈している。一方、焼結温度340°Cの破面は一部延性破面の様相を呈している。マイクロ組織の観察より、焼結温度230°C, 260°Cで作製した試験片の破面は、金粒子同士が溶け合い、その塊がさらに他の塊と溶け合ったようなクラスター状組織になっているのに対し、焼結温度340°Cで作製した試験片の破面は金粒子が完全に溶け合い多孔質

状のスポンジ状組織になっていることがわかる。サブミクロン粒子は径の微小さに起因して表面エネルギーが非常に高く不安定であるため、融点よりかなり低い温度においても容易に粒同士が接合する。このため、焼結温度によって金粒子の接合状態は大きく変化するため、微視組織に大きな差が現れたものと考えられる。また、このような微視的な構造の違いが金焼結体の材料物性に大きく影響している。

3. 機械的せん断疲労試験による疲労強度評価

一般に、はんだ接合部の疲労寿命は、はんだ内部に発生する非線形ひずみ振幅 $\Delta \varepsilon_{in}$ を用いて Manson-Coffin 則によって評価される⁷⁾。本研究では、熱サイクル加速試験と同等の評価ができる機械的せん断疲労試験を行い、金焼結体バンプの疲労寿命評価を行った。加えて有限要素法解析により算出した非線形ひずみ振幅を用いて疲労寿命を評価し、Sn 系鉛フリーはんだの場合の結果と比較した。

3.1 試験片および試験方法

機械的せん断試験機の概要を Fig. 6 に示す。試験片の上下端部を治具に接着固定し、上端部にせん断方向の強制変位を繰り返し与えて行う。せん断方向の強制変位は 0.2 Hz の三角波として与え、サイクルごとに試験機に生じる反力の最大値、最小値を記録した。試験は、試験機に生じる反力が 0 になるまで行った。機械的せん断試験に用いた試験片は Fig. 7 に示すようなフリップチップ試験片で金焼結体バンプが 3×3 の 5 mm 間隔で配置され、上下に Pd めっきが施された Ni 基板で挟まれている。試験片の作製条件は基板との接合を行う際に 300℃ で 5 分加熱した後、230℃ で 30 分加熱を行った試験片、同様に 300℃ で 5 分加熱した後、260℃ で 30 分加熱した試験片、340℃ で 30 分加熱した試験片の 3 種類である。金焼結体バンプに生じる相対変位の測定は Ni 基板が金焼結体バンプと比較し十分に硬いこと、金焼結バンプ数が少なく研磨が難しいことを考慮して上下 Ni 基板の変位の差を金焼結体バンプに生じる相対変位とした。破壊の定義は試験機に生じる反力が最初の 10 サイクルの平均より 10% 低下したサイクル数 N_f とした。Fig. 8 に有限要素法解析モデルを示す。有限要素法解析により相対変位に対する金焼結体バンプの非線形ひずみ振幅を求めた。解析では機械的せん断試験の負荷速度が速いため、クリープを考慮せず弾塑性解析とした。また、試験において変位制御で繰り返しせん断負荷を与えているが試験機に生じる反力の上昇は認められず繰り返し加工硬化はほとんど発生していない。そこで、Fig. 3 に示すように加工硬化が顕著である金焼結体では、繰り返し加工硬化の影響が現れない移動硬化則を用いて解析を行っている⁸⁾。Table 2 は得られた非線形ひずみ振幅－破壊サイクル数の関係を示す。焼結温度 230℃ の試験片で非線形ひずみ振幅 1.5% で破壊サイクル数が 750 サイクルであり、Sn 系鉛フリーはんだとほぼ同等の疲労強度を有している。焼結温度が高くなると疲労寿命は

Fig. 6 Schematic illustrations of the isothermal mechanical fatigue test equipment

Fig. 7 Shape of the specimen for mechanical fatigue test

Fig. 8 FEM model and boundary condition

Table 2. Fatigue life of gold sintered compact on the basis of Manson-Coffin's law (S.T.: sintering temperature)

S.T. [°C]	$\Delta \varepsilon_{in}$	N_f	Fracture mode
230	0.004	1370	Fatigue fracture occurred in gold sintered bump
230	0.015	750	
230	0.022	310	
260	0.004	506	—
260	0.009	92	—
340	0.008	32	Interface fracture

低下する傾向にあるがこれは後述のように界面破壊が発生したためである。

3.2 破壊モード

有限要素法解析では、Fig. 9 に示すように金焼結体バン

Fig. 9 Plastic strain distribution chart generated in the gold sintered compact bump

ブとNi基板の界面近傍に相当塑性ひずみが集中している。つまり、Ni-Pd界面、またはPd-金焼結体バンプの界面で破壊が起こっている可能性がある。試験では直接、金焼結体バンプを観察できていないため、試験後に試験片の成分分析を行い、破面の特定を行った。破面のSEM観察および成分分析はOXFORD社製のエネルギー分散型X線分析装置の付属した日本電子製の走査型電子顕微鏡JSM-6300Fを用いた。焼結温度230°Cで作製した試験片と焼結温度340°Cで作製した試験片について機械的せん断疲労試験後におけるNi基板側の破面の成分分析結果をFig. 10に示す。それぞれ左側が金の成分分析結果、右側がPdの成分分析結果であり、白くなっている部分がその成分が検出されたことを示す。焼結温度230°Cの試験片では、表面に金が多く残っており、めっき処理したPdはほとんど検出されていない。一方、焼結温度340°Cの試験片では対照的に金がほとんど検出されず、Pdが多く検出されている。つまり、焼結温度230°Cの試験片では金焼結体が疲労破壊を起こしているのに対し、焼結温度340°Cの試験片ではNi-Pd界面での破壊であることが分かる。作製時の条件としては、焼結温度のみを変えているため前述のように温度によって機械的性質が大きく変化することを考慮するとバンプの材料特性が大きく影響している可能性が高い。他にも、マクロ的に製作時に形成されるボイドの影響や界面との密着性などが破壊形態に影響している可能性も考えられるが、本論文では材料特性と破壊形態の関係について検討する。焼結温度230°Cの試験片では基板との接合の際に300°C、5分の加熱を行っているため基板との界面近傍はFig. 11に示しているようにスポンジ状組織をしていることが試験後のSEMからわかる。そのため、焼結温度230°Cで作製した試験片のNi基板近傍の組織はスポンジ状組織、バンプ中央部はクラスター状組織となっていると考えられる。金焼結体はFig. 3からもわかるように、焼結温度が高いほど硬くなる。一般的に、ミスマッチを吸収する役割を果たすバンプ材が硬くなるほどひずみが接合界面に集中する傾向がある。そのため、焼結温度230°Cで作製した試験片に比べて焼結温度

(a) S.T.=230 °C

(b) S.T.=340 °C

Fig. 10 Componential analysis about Au and Pd on the surface of Ni substrate

Fig. 11 SEM image of the fracture surface near the interface of the specimens (S.T.=230°C)

340°Cで作製した試験片では非線形ひずみが界面近傍に集中するため界面破壊が発生しやすい。一方、焼結温度230°Cで作製した試験片ではバンプ内にひずみが集中するため界面近傍のバンプ内部をき裂が進展している。破面観察結果と焼結体の機械的性質を考慮すると、変形のミスマッチはバンプ全体の変形により吸収し、局所の破壊に対しては、スポンジ状の微視構造が高い抵抗性を有していたものと考えられる。結果として、焼結温度が230°Cのときの試験片が他の試験条件と比較して高い寿命を示したものと考えられる。

3.3 鉛フリーはんだとの疲労強度比較

2節の引張試験の結果から金焼結体とSn系鉛フリーはんだの材料物性は大きく異なることがわかった。そこで、機械的せん断試験の解析において同じ相対変位を負荷した場合に発生する相当塑性ひずみが最大となるコーナー部の非線形ひずみ振幅量について焼結温度230°Cの金焼結体バンプとSn系鉛フリーはんだとで比較した。解析ではFig. 8の有限要素法解析モデルを用いた。解析結果をFig. 12に示す。Sn系鉛フリーはんだは金焼結体バンプ比べて加工硬化が小さく、また縦弾性率は高いが降伏応力が低いために同じ相対変位を与えても非線形ひずみは金焼結体バンプよりも大きくなる。解析結果よりSn系鉛フリーはんだに1%程

Fig. 12 Comparison of equivalent inelastic strain range generated in the tin-based solder alloys and gold sintered compact bump (S.T.: Sintering Temperature)

度の非線形ひずみ振幅が発生する場合、金焼結体バンプに発生する非線形ひずみ振幅は0.1%である。つまり、Sn系鉛フリーはんだは、せん断負荷を受けるとそのほとんどを塑性ひずみで吸収しているのに対し、金焼結体は縦弾性係数が小さいため、バンプに生じる相対変位が小さいほど弾性変形で吸収する割合が大きくなる。そのため金焼結体バンプとSn系鉛フリーはんだに生じる非線形ひずみ振幅量の差が大きくなっている。一般に、フリップチップ接合における熱サイクル疲労破壊などは異材間の線膨張係数のミスマッチによってもたらされるため、変位制御に近い負荷が与えられる。このとき、弾性ひずみでミスマッチを吸収する金焼結体のほうが非線形ひずみとして損傷を累積しながらミスマッチを吸収する従来のはんだ材料と比較しても優れた熱サイクル疲労特性を示す可能性がある。

4. まとめ

本論文では、焼結温度の異なる金焼結体の機械的特性について引張-応力緩和試験、機械的せん断疲労試験および有限要素法解析を用いて調査した。得られた結果は以下のようにまとめられる。

焼結体の機械的性質

- (1) 低温焼結した試験片では、縦弾性率および引張強さは低い値を示す。得られた値は、焼結温度が230°Cの場合、金のバルク材に比べて1/4以下であった。
- (2) 室温においては、焼結体はほとんどクリープ変形を生じないものの、150°Cにおいてサブミクロン金焼結体ではクリープ変形が発生する。20~80 MPaの範囲におけるクリープひずみ速度は、Sn系はんだと同等もしくはそれ以上の値を示す。
- (3) 金焼結体の機械的性質は微視構造に強く依存する。焼結温度が低い場合、クラスター構造が支配的となり引張強度、縦弾性率は大きく低下する。一方、スポンジ状構造が支配的となる高温焼結体では引張強さが上昇する。

疲労寿命特性

- (1) クラスター構造が支配的な低温焼結バンプでは、き裂はバンプ内に発生する。一方、スポンジ構造が支配的となる場合には界面破壊が発生していた。
- (2) バンプ内部で発生した疲労破壊に対して、有限要素法解析により得られる相当非線形ひずみ振幅に対するき裂発生サイクル数はSn系鉛フリーはんだ合金のそれと比較してもほぼ同程度となっている。
- (3) 破面観察より、き裂発生箇所であるバンプコーナー部近傍では、接合プロセスの影響でスポンジ状の構造を有していることがわかった。このため、ミスマッチを吸収するバンプの変形特性を損なうことなく破壊の発生する箇所が微視構造の変化により強度が上昇していることを示唆しており、疲労特性の上昇はこれによりもたらされたものと考えられる。

金焼結体は焼結温度が高いほど、材料強度は向上する。しかし、バンプに生じる負荷は主としてチップと基板との線膨張係数のミスマッチによって発生するものであるため、材料としての強度が強くなれば負荷を受けたときにバンプに発生する高さ方向の応力が高くなり、界面強度が課題となる。そのため、インナーバンプの材料には十分な疲労強度とある程度の柔軟さとともに界面強度を保障する接合方法が求められる。十分な界面密着性と作製プロセスの安定性を確立していくことで、サブミクロン金焼結体は現在広く普及しているインナーバンプの代替材料として期待できる。

(2006.2.2-受理)

文 献

- 1) 半導体パッケージ委員会：“SiPの将来像”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **8**, No. 1, pp. 1-4, 2005
- 2) 池田 徹，田中直敬：“接着接合による微細バンプ接続構造の信頼性評価”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **8**, No. 1, pp. 72-78, 2005
- 3) 田中直敬，河野賢哉，三浦英生，角 義之，吉田育生：“ACF等を用いた接触構造における接続信頼性影響因子の解明”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **5**, No. 6, pp. 568-573, 2002
- 4) 田中直敬，河野賢哉，内藤孝洋：“樹脂フィルムを用いた狭ピッチ対応フリップチップ接合の接続信頼性影響因子の検討”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **8**, No. 1, pp. 37-43, 2005
- 5) 廣畑賢治，川村法靖，向井 稔，川上 崇，瀬川雅雄，高橋邦明，于 強，白鳥正樹：“圧接工法によるフリップチップの接続マージン評価”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **5**, No. 1, pp. 47-53, 2002
- 6) 小田正明：“金属ナノ粒子”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **5**, No. 6, pp. 523-528, 2002
- 7) 于 強，他：“電子デバイスのはんだ接合部の熱疲労強度に

- おける解析・実験ハイブリッド評価（第2報：機械的疲労試験による評価）”，日本機械学会論文集A，Vol. **64-619**，pp. 558-563, 1998
- 8) 金 道燮，于 強，澁谷忠弘，白鳥正樹：“鉛フリーはんだ接合部の応力・非線形ひずみ振幅評価に及ぼす硬化則の影響”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. **7**，No. 2, pp. 161-169, 2004
- 9) 平田英之，井上大輔，三原 豊，吉村英徳，村上勝彦：“超軽量金属MHS成形体の引張強度特性の評価”，材料試験技術，Vol. **49**，No. 4, pp. 29-34, 2004
- 10) 一ノ瀬 昇，尾崎義治，賀集誠一郎：“超微粒子技術入門”，オーム社，1998